

[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl<sup>7</sup>

B01D 59/48

B01D 59/50



# [12] 发明专利说明书

[21] ZL 专利号 97194370.2

[45] 授权公告日 2004 年 8 月 11 日

[11] 授权公告号 CN 1161178C

[22] 申请日 1997.3.12 [21] 申请号 97194370.2

[30] 优先权

[32] 1996.3.15 [33] GB [31] 9605435.8

[32] 1996.5.21 [33] GB [31] 9610606.7

[32] 1997.2.27 [33] GB [31] 9704078.6

[86] 国际申请 PCT/GB1997/000671 1997.3.12

[87] 国际公布 WO1997/034684 英 1997.9.25

[85] 进入国家阶段日期 1998.11.4

[71] 专利权人 英国核燃料公众有限公司

地址 英国切希尔

[72] 发明人 杰弗里·霍罗克斯-贝利

科林·怀特黑德

保罗·吉尔克里斯特

邓肯·爱尔弗雷德·韦伯斯特

审查员 孔德辉

[74] 专利代理机构 中科专利商标代理有限责任公司

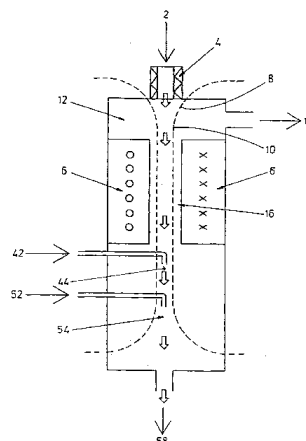
代理人 林道濂

权利要求书 4 页 说明书 18 页 附图 5 页

[54] 发明名称 用离子化分离同位素的方法加工处理核燃料

[57] 摘要

本发明提供改进的加工处理的设备和方法，包括进料物料具有选择性离子化作用以及离子化核素与非离子化核素的分离，提供一种化学物料的引入以引起进料中部分非离子化的和/或固态或液态发生选择性转变的技术。该工艺流程借助于离子化核素和非离子化核素彼此处于平衡而获得高的物料通过量。



1. 一种工艺流程，包括以下步骤：
  - a) 供应进料，该进料是由混合组分组成的；
  - b) 将所述进料转变成为等离子体或离子化形式；
  - c) 供应至少一种组分其呈现至少部分离子化形式和至少一种不同组分其呈现至少部分非离子化形式；
  - d) 在磁场内约束所述等离子体或离子；以及
  - e) 至少部分地从所述非离子化组分中分离离子化组分；其中进料各组分之间的能量输入不是选择性的。
2. 根据权利要求1所述的工艺流程，其中进料中的所有组分都升高到相同的能级。
3. 根据权利要求1或2所述的工艺流程，其中该等离子体或离子化形式具有一定的温度，并且通过控制等离子体或离子化的温度以提供组分以所需的方式进行选择性离子化。
4. 根据权利要求1所述的工艺流程，其中需要的组分从具有金属和非金属性的元素混合物中提取。
5. 根据权利要求1所述的工艺流程，其中进料为六氟化铀。
6. 根据权利要求5所述的工艺流程，其中进料为消耗过的六氟化铀。
7. 根据权利要求1所述的工艺流程，其中全部的一种给定组分是离子化的，全部的另一种组分是非离子化的。
8. 根据权利要求1所述的工艺流程，其中在产生等离子体或离子化形式中，进料从分子转化成离散的原子和/或元素形式。
9. 根据权利要求8所述的工艺流程，其中以离散的原子和/或元素形式发生选择性分离。
10. 根据权利要求1所述的工艺流程，其中从等离子体中除去非离子化组分。

11. 根据权利要求1所述的工艺流程, 其中从非离子化组分中分离离子化组分在多个阶段进行。

12. 根据权利要求11所述的工艺流程, 其中在靠近进料入口处的一个或多个阶段压力高于远离入口处的一个或多个其它阶段的压力。

13. 根据权利要求11所述的工艺流程, 其中从入口处起算, 一个阶段的压力是前一阶段压力的30%到60%。

14. 根据权利要求11所述的工艺流程, 其中提供了三个阶段, 第一阶段在10到50Pa之间操作, 第二阶段在5到20Pa之间操作, 第三阶段在2到10Pa之间操作。

15. 根据权利要求1所述的工艺流程, 其中该方法进一步包括将至少一些分离的离子化组分转化成非离子化形式。

16. 根据权利要求15所述的工艺流程, 其中通过在一表面上撞击将分离的离子化组分转化成非离子化形式。

17. 根据权利要求15所述的工艺流程, 其中通过添加化学物料将分离的离子化组分转化成非离子化形式。

18. 根据权利要求17所述的工艺流程, 其中在预定的动力能量级下加入化学物料, 以得到所需的气态形式的非离子化形式。

19. 根据权利要求17所述的工艺流程, 其中加入化学物料或在下一阶段再加入化学物料来降低动力能量级到生成固体产物的阶段。

20. 根据权利要求1所述的工艺流程, 其中通过将杂质蒸发出去, 控制温度条件以纯化收集的组分。

21. 根据权利要求20所述的工艺流程, 其中杂质以带有被收集组分的化合物的形式和 / 或金属的化合物的形式被蒸发出去。

22. 根据权利要求1所述的工艺流程, 其中通过沸腾和 / 或蒸发和 / 或升华固体或液体的初始进料, 将进料转化成气态形式。

23. 根据权利要求1所述的工艺流程, 其中原子量大于90的全部金属元素是被离子化的。

24. 根据权利要求1所述的工艺流程, 其中进料为用过的核燃料。

25. 根据权利要求1所述的工艺流程, 其中进料为四氟化铀。

26. 根据权利要求1所述的工艺流程, 其中进料为六氟化铀。

27. 根据权利要求1所述的工艺流程，其中进料为金属卤化物。

28. 根据权利要求1所述的工艺流程，其中进料为四氯化钛。

29. 根据权利要求1所述的工艺流程，其中离子化和非离子化的进料组分处于相互平衡状态。

30. 一种分离设备，该设备包括：

a) 一种等离子体或离子发生器；

b) 一种将混合组分的进料进行有选择性的离子化的装置；

c) 一种用来产生约束等离子体或离子的磁场的磁场发生装置；以及

d) 一种从磁场中去除非离子化的组分的装置；

其特征在于a) 和b) 项的装置是使进料各组分之间的能量输入不是选择性的。

31. 根据权利要求30所述的设备，其中a) 和b) 项的装置是使离子化和非离子化的组分处于相互平衡状态。

32. 根据权利要求30所述的设备，其中通过等离子体的温度引起组分的离子化。

33. 根据权利要求30所述的设备，其中磁场发生装置提供有通过磁场限定的一种中心圆筒状可容度区。

34. 根据权利要求30所述的设备，其中要除去非离子化成分的装置含有泵单元。

35. 根据权利要求34所述的设备，其中在一个或多个阶段从进料中分离出非离子化的组分。

36. 根据权利要求35所述的设备，其中用带孔的隔板单元将各阶段彼此隔离。

37. 根据权利要求36所述的设备，其中小孔具有一个半径，其相当于a) 项中距离进料入口处的等离子体或离子流半径，而且一个或多个小孔的半径与自a) 项中进料入口的距离的四次方根成正比。

38. 根据权利要求30所述的设备，其中设备进一步提供了用于将化学物料添加到余下工艺流中，以对余下的组分提供猝熄和 / 或冷却作用的装置。

- 39. 根据权利要求38所述的设备，其中设备进一步提供了用于添加另外的化学物料的装置。

40. 根据权利要求38所述的设备，其中在多个阶段通过多个化学物料入口加入化学物料，其中多个化学物料入口沿着工艺流流动的方向彼此隔开。

### 用离子化分离同位素的方法加工处理核燃料

本发明涉及到工艺过程的改进，特别是，但不只是涉及核燃料材料，也包括核燃料工业材料的工艺过程的改进。

燃料级核燃料和伴生材料的生产和再循环是一很长而复杂的过程。例如，从开采铀矿石开始，该过程大体上包括把等外矿级物料逐步转化并浓缩成一种从外形和品位上都适合生产燃料球的材料。

总工艺路线的中间阶段也构成了生产多种其它材料的起点。

全工艺流程的主要阶段为：把初始的铀氧化物浓缩为六水合硝酸铀酰；然后将六水合硝酸铀酰转化成 $UO_3$ ，进行脱硝；再将 $UO_3$ 还原为 $UO_2$ ；氢氟化步骤是使 $UO_2$ 生成 $UF_4$ ；进一步氢氟化则生成 $UF_6$ ；用各种物理的或化学的方法将 $UF_6$ 浓缩；最后将浓缩了的 $UF_6$ 转化成陶瓷级的 $UO_2$ ，它是制造燃料球的合适形式。

用过的核燃料的再循环同样都包含有一系列复杂的化学和物理步骤：从废弃燃料中分离各种裂变产物并将存在于用过的燃料内其它组分分离出来，使废弃燃料中 $^{235}U$ 的浓度提高到可以再一次被作为燃料使用的程度。这些生产过程中的复杂程度同样也存在于包含在或有关于燃料循环的其它生产加工流水线上。例如存在于其它物料中的钍、钷和钆的再循环。例如用在镁诺克斯合金反应器中非浓缩的金属铀的生产也涉及到一复杂的工艺流程。

大范围的或有关的工艺过程在生产紧接着核燃料领域外的其它材料时也会遇到。如对金属钛、铌和锆通常运用的生产路线，其中包括将含有该金属的化合物提炼加工成它的卤化物形式，然后再将卤化物分解成金属。

若干真正加工处理的工厂按其规模、资金投入和运行费用，都需要完成包括这些全部工艺流程的各阶段。由于不同的加工过程和加工需

要，伴随的问题也接踵而来。例如为了生产所需的氟，在氟化的工艺流程中就包含了一个复杂而危险的电解过程。

本发明的目的在于提供一个替代的处理方法，对多个过程和 / 或一个过程使之成为更加有用的形式和 / 或一个重复利用物料的过程，连同装置一起来完成这些过程。

根据本发明的第一方面，我们提供由以下步骤构成的工艺流程：

- (a) 提供一种进料，该进料是由混合组分构成的；
- (b) 将所述进料转变成等离子体或离子化形式；
- (c) 至少提供一个至少部分离子化形式中的组分和至少部分非离子的形式中的至少一个不同组分；
- (d) 将所述等离子体 / 离子约束在一个磁场内；
- (e) 从所述非离子化组分中分离出所述的离子化合物。

所需的组分既可以从金属性的也可以从非金属性的同位素和 / 或元素的混合物中提取。分离可以是完全的也可以是部分的。

供给含氮化合物的进料应引起重视，但供给含氟形式的进料更可取。硝酸铀酰、六氟化铀、硝酸钚、硝酸钍、消耗过的硝酸铀酰，消耗过的六氟化铀或所有这些的混合物都是合适的进料。其它合适的进料还有烧过的核燃料，四氟化铀和其它的金属卤化物如四氯化钛。这些物质都以水合物形式存在。

该混合组分可以由两个或两个以上不同的元素组成；由同一元素的两个或两上以上不同的同位素组成；由不同元素连同那些元素中一个或一个以上元素的不同同位素组成；或由多种化合物和 / 或结合不同元素、不同同位素、或不同同位素和不同元素的化合物的混合物组成的。在本申请中涉及到“组分”这一术语，都包括这样的各种可能性，除非有相反的说明的除外。

可以用气体、液体、固体或这些形态的混合物把进料引入磁场，最好以气体形态将进料引入磁场。

进料可以将气体、液体、固体或这些形态的混合物引入等离子体发生装置。

进料可以将气体、液体、固体或这些形态的混合物引入离子化装

置，气体进料对离子化装置是更可取的，特别是在不同时配备等半导体发生器的情况下。

可以通过沸腾和 / 或蒸发和 / 或升华的方法把固体的或液体的初始进料以气态形式提供进料，转化为气态可以通过炉子、微波加热器或其它形式的加热设备来实现。最好在离子化之前将气体引入。

最好是所有的或基本上所有的给定部分都被离子化。最好是或基本上是所有给定的组分都未被离子化。

最好是将所述进料中的某些金属元素或全部金属元素都离子化，尤其是对原子量大于90的金属元素进行离子化是可取的。最好在所述进料中将某些非金属元素或全部非金属元素都不要离子化。可取的办法是将原子量90以下的所有元素，最好是70以下的，最理想是60以下的所有元素以非离子化形式保留下来。如对铀和 / 或钚和 / 或钍和 / 或钷都进行离子化，而氢和 / 或氟和 / 或氧和 / 或氮不被离子化，硼最好不要被离子化，最好裂变产物也不被离子化。

等离子体的温度能引发组分的离子化。除此之外或用另一种方法，通过组分与由电子回旋共振产生的高能电子之间的相互作用也可以引起组分离子化。

离子化程度和 / 或离子化的组分可以受控于能量的输入和 / 或组分在电子回旋共振装置中滞留的时间。

最好用能量输入的水平来控制离子化（程度）而能量输入的水平可受控于等离子体的温度。最好在进料各组分之间能量输入是没有选择性的，按这种方法进料中的所有组分都升高到相同的能级，最好离子化的和非离子化的进料组分为现有条件下处于彼此平衡状态。

进料可以被转化为气体并进入ECR（电子回旋共振）装置进行离子化。炉子加热器或蒸发器可以把固体的或液体的进料转化成气体的 / 蒸汽的形态。

所以在一个特定的实施方式中，等离子体可以将进料转变成离散的原子，随后电子回旋共振至少可以引起进料组分的部分离子化，最好是有选择性的部分离子化。

进料也可以是分子形式的，用等离子体发生方法和 / 或离子化方法

和 / 或加热方法可以将分子形式转变成离散的原子形式和 / 或元素形式。向离散的原子和 / 或元素形式转变的过程中有可能导致一个或一个以上的已生成的各种物质的部分离子化。于是六水合硝酸铀酰进料可能与 $N_2$ 和 $O_2$ （元素形式）以及 $U^+$ （离子化粒子）一起被转变成U、N和H（离散的原子形式）。最好进料以分子形式提供，并以离散原子和 / 或元素的形式与已离子化的离散原子和 / 或元素进行选择分离。这就使该技术比以元素进料，以元素形式分离或分子进料而后以分子形式分离的技术应用于种类更繁多的材料。

控制所述等离子体的温度，可以对组分按照所需要的方式提供选择性离子化。于是等离子体可以使进料中的某些组分离子化而留下其它组分，如裂变产物和 / 或非离子化的非金属元素。

最好在3000-4500K（绝对温度）产生所述的等离子体。最好用微波或射频的方法产生等离子体。在发生器内最好在1000和10000Pa（帕斯卡）之间操作等离子体。最好将这一压力值控制在 $2000 \pm 10\%$  Pa。

除此之外可用另一种方法：即在分离之前控制进料在等离子体中的滞留时间，可以对组分依所需要的方法提供选择性分离。

最好将进料以非离子化的形式导入容纳的磁场。最好在一不带电荷气体的磁场内发生部分离子化过程。该气体可以是分子形式或原子形式。

磁场可以构成具有一明确的筒形状的活动体积，在其中形成等离子体 / 离子。最好等离子体 / 离子从等离子发生装置和 / 或离子化装置中沿着这个安全壳的轴通过到下一步的分离阶段。

从等离子体中除去非离子化的组分是分离离子化的和非离子化的组分的较好方法，最好非离子化组分是气体。可以用泵将非离子化组分从离子化组分中抽走。因此离子化组分被留下来，并受磁场吸持。

从非离子化组分中分离离子化组分可以分若干个阶段进行。最好这些阶段都是彼此独立的。这些阶段可以用一种带孔的隔板彼此分开。最好这些孔完全处于磁场的安全壳范围之内。最好一个或一个以上阶段是在一个或一个以上其它阶段不同压力下进行操作。用泵可以维持压力的操作水平。最好在一个或一个以上阶段靠近入口处的压力比远离入

口处一个或一个以上的下一个阶段的压力要高。最好每一个区段的压力相对于靠近入口处的前一阶段的压力逐一降低。从入口处向前算起，最好每一阶段的压力是前一阶段压力的30%到60%。

最好提供三个阶段，每一阶段的长度在0.5到2m之间。

最好第一阶段在10到50Pa之间操作，优选在40Pa $\pm$ 10%。

第二阶段最好在5到20Pa之间操作，优选在16Pa $\pm$ 10%。

第三阶段最好在2到10Pa之间操作，优选在7Pa $\pm$ 10%。

将已分离的不带电荷的组分为后继使用，可以进行再循环和 / 或还要作进一步处理。这可以包括进一步的有选择性的离子化和 / 或有选择性的加工处理以分离不同的组分。

已分离的带电荷组分最好仍受磁场约束。已分离的带电荷组分可以作下进一步处理，包括有选择性的去离子化；去离子化后再被进一步选择性离子化；或其它选择性加工以分离不同的组分。

对带电荷组分可以进行冷却和 / 或放电，以得到一种液体的和 / 或固体的不带电荷产物。带电荷组分可以被收集在一个接地的或带电的网、板、电极或产物自身的基体上。带电荷组分可以收集在器皿或容器中，在器皿和容器中可以提供储存液体的储器。

控制温度可以将杂质蒸发出去，来提纯被收集的组分。蒸发出的杂质可以是带金属的化合物的形式和 / 或被收集组分的化合物的形式。应该重视卤化物的蒸发。

从收集点可以周期性地或连续不断地除去被收集的带电荷组分。

该方法可以包括导入化学物料的下一个步骤，最好是在受控的动能级下，使化学物料与留下的带电荷组分接触，带电荷组分的动能级和化学物料经这样的接触产生了不带电荷组分或粒子。该组分可能仍以气体存在。

化学物料可以由能选择性地给出所需的不带电荷的粒子和 / 或终端产品的材料，如氧或惰性气体作为化学物料所组成。可以在100K和2000K之间特别是在100K到500K之间加入化学物料。组分和化学物料可以结合而成为粒子。一种氧化物表示着一种可能的形式。

控制结合体的温度可以按所需要的形式提供粒子。对铀温度最好控

制在2500K使铀呈现气体 $UO_2$ 作为主要形式。

向不带电荷的组分中继续加入化学物料可以减少组分的动能级直到使其生成固态产物。除此之外在不带电荷组分的表面发生碰撞，最好是冷表面，是减少动能级的另一种方法。不带电荷粒子动能级的减少（过程）应在瞬间发生以避免出现不想要的中间平衡产物。转变周期最好小于2ms（毫秒）。

再加入的化学物料可以与先前加入的物料相同，也可以不同。

这一流程的产物最好是所希望得到的化合物、元素或同位素、而且最好是具有所需要的级别。虽然按这种方法以产生纯金属，但陶瓷级的金属氧化物是最可取的产物。控制流程条件可以生产出铀、钚、钍和真正的MOX产品。

根据本发明的第二方面，我们提供由以下部件组成的分离设备：

- (a) 等离子体 / 离子发生器；
- (b) 混合组分构成的物料进料的选择性离子化装置；
- (c) 产生含有等离子体 / 离子磁场的磁场发生装置；以及
- (d) 从磁场中除去不带电荷组分的装置。

进料可以固体、液体或气体形式提供。

加热炉、加热器、微波源、蒸发器或其它加热装置都可被用来对进料进行加热和 / 或使成蒸汽和 / 或升华和 / 或汽化和 / 或蒸发。

最好用微波或射频加热产生等离子体 / 离子。组分的离子化（过程）可以由等离子体的温度来引发。

最好将等离子体加热到3000K到4500K之间， $4000K \pm 10\%$ 更合适。等离子体 / 离子发生器的出口半径最好在20-40mm之间。

等离子体发生器可以被用作对混合组分进料进行选择离子化的装置。此外用电子回旋共振装置产生的高能电子碰撞是对混合组分进料进行选择离子化的另一种装置。

进料可以分子气体和 / 或原子气体的形式被输入ECR。

最好用能量输入的水平来控制离子化的程度和 / 或离子化组分（的种类），能量输入的水平又受控于温度。最好进料均匀地被激发。最好在现存组分间的能量输入不是选择性的。最好进行所产生的部分离子化

/ 部分非离子过程是处于现行条件的平衡状态。

包容的磁场可以是轴向排列。

最好磁场发生装置包含一个或一个以上的线圈。最好磁铁是以环状的或圆筒状装配的。按这种方法，磁场规定出了一个中央可容度区，磁场最好是圆筒形状结构。作为可容度场的磁场最好装配成轴向排列。用于轴向排列的磁场强度应多于0.075特斯拉（tesla）或多于0.1特斯拉。

最好在离子化之前就将进料引入磁场。

最好是从等离子体中除去非离子化的组分来进行分离。最好除去不带电荷组分的装置包含有一个泵器械。最好将带电荷组分留在磁场中。

从进料中分离非离子化组分需要一个或一个以上的阶段，最好，非离子化组分从出口被抽出的一个或一个以上的出口在每一阶段都要设置。

各阶段之间最好用一个挡板将其彼此分开，这个挡板带有孔洞，进料可以从孔洞中通过。挡板上的孔洞最好是轴向排列。一个或一个以上挡板上的孔径（或尺寸）要大于更靠近进料入口处的一个或一个以上挡板上的孔径。最好是距进料入口处远近逐一放大孔径。

最好在进料入口处这段距离内的孔洞半径大体上要与等离子 / 离子流的半径相当。孔洞半径最好与在那个位置的等离子 / 离子流的半径相等或小于或大于它的10%。最好一个或一个以上的孔洞半径是与进口或等离子发生器喷嘴的距离的四次方根大致成正比。

最好孔半径要小于那位置的磁场所限定的可容度区的半径。

这个装置还可以设置附加设备，供化学物料到余下的工艺流中去。最好被引入的化学物料是氧或惰性气体。投加的化学物料对于余下的组分发生猝熄和 / 或冷却作用，这是尤其要优选的。最好化学物料在接触到余下的组分时把它从带电荷状态转变成不带电荷的状态。最可取的是随着这一变化，组分仍保持在气体状态。

在特别优选的实施方案中，用加入作为化学物料。最好是在100到500K中加入氧，它与带电荷组分结合时给出大约2500K的结合温度。在这一温度下，例如U作为原本不带电荷的气体以 $UO_2$ 的形式保留下来。

还有更进一步加入化学物料的方法，这种进一步投加，最好使工艺

流从气态转变成固态。另外，换另一种方法，通过撞击不带电荷组分的表面，最好是冷表面，能够为降低动能级提供条件。转变过程最好是快速以制止任何干扰平衡态的产生。产物最好是陶瓷级燃料物料如 $\text{UO}_2$ 。

根据本发明的第三个方面，我们提供工艺包括以下步骤：

- (a) 提供一种进料，该进料由混合组分组成；
- (b) 将所述进料转变成等离子 / 离子化形式；
- (c) 至少提供一个部分离子化形式的组分以及至少一个部分非离子化形式的组分；
- (d) 把所述的等离子体 / 离子包含在一个磁场内；
- (e) 从所述的非离子化组分中分离出所述的离子化组分；而且还包括将已分离的离子化的一个组分或多个组分中至少某些（组分）转化成一种不带电荷的形式。

通过降低组分的动能级，即将其冷凝，可以将该组分转变成不带电荷的形式。

通过撞击组分的表面，尤其是冷表面也可将其转变成不带电荷的形式。

通过加入化学物料也可将组分转变成不带电荷的形式。可以将上述的一种或一种以上的方法结合使用。

最好在预先测定过动能级后再加入化学物料，以便得到所需的不带电荷形式。最好不带电荷形式是气态的。要重视把一种组分，一种或一种以上组分的一部分转变成不带电荷的形式而保留一种或一种以上的其它组分，或一种或一种组分的一部分和 / 或第一种组分或多种组分的一部分为带电荷的形式。

加入化学物料，或在下一步再加入化学物料，这是为便于将动能级降低到产生固体产物的阶段。

加入的化学物料可能与组分反应也可能仅仅是降低组分的动能级。组分可能会生成元素形式或化合物形式。

最好从不带电荷的气体粒子到固态产物的转变很快发生，最好这一转变过程在2ms以内。

从六氟化铀进料中分离铀和氟有潜在的用途。此外从六水合硝酸铀

酰和其它形式的进料中分离铀应引起注意。

从带电荷组分中分离出的不带电荷组分的进一步加工处理及随后的利用要加以重视。用这一方法进行生产或重复利用氟是一种特别优选的形式。

当然本发明的这一方面可以包括本申请在其它地方讨论的任何特征或可能发生的情况，包括那些与离子 / 等离子体的发生、离子等离子体的可容度、分离的方法以及其它等等。

根据本发明的第四个方面，我们提供分离装置包括：

- (a) 一种等离子体 / 离子发生器；
- (b) 一种把混合组分进料物料进行有选择性离子化的设备；
- (c) 一种磁场发生设备，其产生对等离子体 / 离子含有磁场；
- (d) 一种从磁场中除去不带电荷组分的设备；以及
- (e) 一种设备至少将已分离的带电荷组分的一部分转变不带电荷的

形式。

通过降低组分的动能级，即冷凝，将组分转变成不带电荷的形式。

通过组分的表面发生碰撞，尤其是冷表面可将组分转变为不带电荷的形式。

加入化学物料可以将组分转变成不带电荷的形式。可以将一种或一种以上的这些方法结合使用。

化学物料的加入可以是一步的也可以是多步的。当使用多步加入时，最好把各个进入口沿着工艺流流动的方向彼此隔开。于是第一个设备可以设置来实现从带电荷状态转变不带电荷状态，而第二步或再下一步是转变不带电荷的组分成为固态或成为所需的化学组成。要重视所需要的产物的元素形式和化合物形式两者的生成。

当然，在本申请中在别处讨论过的设备或方法的其它特征也会关连到这一方面。

根据本发明的第五方面，我们提供组分、物料、化合物、元素或同位素，这些同位素是根据本发明的第一和 / 或第三方面和 / 或用本发明的第二和 / 或第四方面的设备和 / 或经它们进一步加工过的同位素。

已分离的组分可以是在进料中提供的不同元素。因此，从氟中分离

铀应予重视，这是出现在一种或一种以上给定化合物中其他元素从中彼此分离出来的。还应当重视适用于燃料用途的陶瓷级金属氧化物的生产。

组分间的分离程度可能基本上是完全的或只是部分的。因此，应重视这样的生产过程：进料组分中的一部分作为过程中的不带电荷组分被提取，而进料组分中的大部分继续进入从带电荷组分生成的产物流。

当然，不带电荷的第一或第二产物流可形成有用的组分其目的在于已分离的组分，其与从带电荷组分中分离出的最后的终端产物一样多的组分。

根据本发明的第六个方面，我们提供燃料球、燃料棒或燃料组装或安装有该产物的核反应堆的一部分，或一种进一步加工的产品，此产品可以是本发明的从第一到第五方面的任何一项。

现在说明本发明的各种实施方式，只是通过实施例并结合附图，附图有：

图1为本发明第一实施方式的示意图；

图2为铀、氧、氮和氢的相图；

图3为 $U^+$ 、 $UO$ 、 $UO_2$ 、 $UO_3$ 的相图；

图4为本发明的第二实施方式的部分视图的示意图；

图5为本发明的第三实施方式的示意图；以及

图6为本发明的第四实施方式的示意图。

本发明的技术提供多方面适用的加工处理系统，这些系统可成功地运用于多种初始物料和初始物态，产生多种成品物料、物态和形态。

### 六水合硝酸铀酰的进料

如图1所示，将被加工处理的进料按箭头2的方向输入。在这一特例中，进料是由一种六水合硝酸铀酰进料液组成的，该液态进料通过等离子体发生器（4），将该液体进料迅速地加热至大约4000K。该等离子体发生器（4）可以是微波或RF型的等离子体发生器。等离子体的温度要便于控制。

按（6）排列的导线圈产生高强度的磁场，其磁力线用（8）表示。

当进料在等离子发生器内被离子化的时候，它就已经在这个磁场的范围之内了。

导线圈被设定产生的场强应大于0.1特斯拉（tesla）。

由于等离子发生器（4）的作用结果，进料在极高温下进入进料箱（12），在这一温度下，六水合硝酸铀酰分裂成为组成它的原子，这就使进料物料的加工处理过程可按照进料的单独原子配制而无须元素形式的进料，或只根据分子间的差别加工进料，这些分子或是随后被离子化，或是不被离子化。

从图2提供的相图看，在4000K并经受这种类型的条件下，在进料箱（12）中钠原子被带上电荷 $U^+$ ，用线20表示。与之相反，在这一温度时大量的氮、氧和氢是不带电荷的原子或分子如图2中的线所示，线22代表氮，线24代表氧，线26代表氢。离子都以气态形式存在。

选择性离子化是作为该系统的总能级的结果而发生的。于是在现行条件下离子化的核素和未被离子化的核素是由在那些条件下的那些核素的平衡态决定的。

所以所获得的选择性离子化是稳定的，并能持久使得后续处理能够进行而没有时间的压力。

如果能量仅仅被选择性地输入到系统中某一特定的核素则可得到选择性离子化。然而由于离子化和非离子化核素在这种情况下发生碰撞而引起的能量转移又可使前面提到的非离子化核素的离子化和/或前面提到的离子化核素的放电。这种情况下分离必须很快完成，否则分离中得到的任何重要的选择性在此之前选择的性质将损失殆尽。

在本系统平衡态等离子体中，碰撞不仅是容许的，还合乎保证整个等离子体能量输入分配的需要。然而，碰撞并没有不利的影响。例如在现行的平衡条件下， $U^+$ 和F原子之间的碰撞与绝大多数结局一样将得到 $U^+$ 离子和F原子。平衡条件不能提供足够能量，因此碰撞也引发不了电子转移和离子放电。允许碰撞发生的势能也意味着等离子体可以在相对密集的状态下被操作，允许大量的物料通过。如果碰撞不得不被避免，那么就希望离子和原子的密度尽可能的低以减少发生碰撞的可能性。

因为铀离子是带电粒子，它被磁场限定，并向前通过超导线圈

(6)。氮、氧和氢原子因其不带电荷的性质，使其可以自由移动，被从磁场释放出来，随后可用“泵”将它们从进料箱(12)、物料流(14)中除去。为达到这一目的可使用真空泵。

接着发生的物料流(14)冷却使得这些物料退回到重新结合的平衡，产生 $N_2$ 、 $O_2$ 和水和氮的氧化物。

作为该工艺方法这一方面的结果，铀已从构成六水合硝酸铀酰进料的其它元素中被分离出来，接着可根据需要对已分离的铀进行处理。

出现在本工艺流程(16)部分中的强而均匀的磁场紧密地吸持着铀离子。

把氧进料(42)引入该工艺流程的(44)部分，U离子发生猝熄。控制猝熄，温度可以降到2500K可以起作用。从图3可看出在这一温度下，虽然其它铀氧化物形式似乎也少量存在，但物料的主要形式是不带电荷的 $UO_2$ 气体。系统再一次达到平衡。

如果需要，可施加下一个猝熄物料流(52)，温度可再进一步降低直到从气体迅速地在位置(54)产生陶瓷粉末状的固态铀氧化物。该氧化铀作为物料流(58)流出。

该产品(固态氧化铀)可以经受进一步后续加工，譬如将其提高为燃料级的材料。

该工艺流程提供在一个单独的标准型组件内为六水合硝酸铀酰液体进料转变成二氧化铀粉末。与其它进料化合物和/或进料化合物的混合物都可以得到相似的结果。

一个总长度约10m、活动区域直径约1m而与这一工艺过程相适应的单独的标准型组件每小时可以加工处理50公斤到200公斤的进料铀。

在这一组件内，铀的滞留时间极短，在10ms(毫秒)数量级。这一时间正是铀离子在4000K下运行的理论上平均速度的反映，亦即 $6 \times 10^4 \text{ cm/s}$ 。

### 已用过的燃料进料

除了把天然的六水合硝酸铀酰转变成燃料级的材料外，该技术还可

应用于其他加工领域，包括从已用过的燃料棒中提取所需组分的再加工产品。

用过的燃料主要是 $\text{UO}_2$ 粉末与多种裂变产物相结合组成的，这些裂变产物的原子量一般低于60，为低浓度的 $^{235}\text{U}$ 以及钚。把这种材料加工成硝酸盐液体再把该液体引入上面提到的工艺过程，可以对下面的分离起作用。

再一次用图1所示的设置，在紧接着等离子体发生的初始进料箱（12）中， $^{235}\text{U}$ ，钚同位素和 $^{238}\text{U}$ （大部分的核燃料由这些物质组成）都离子化了。而绝大多数的裂变产物，以及N、H、O仍以非离子化状态存在也不受磁场约束，可以用泵把这些材料送入产物流（14）。

对产物流（14）可以进行再加工，包括根据本发明的下一工序或多个工序以分离出该物料流中前前后后其他核素的有价值的组分、同位素或元素。

收集仍留在磁场内的产品流（16）和/或使它再进一步加工都是可能办到的。如上所述产品流（16）可以被猝熄产生一种固态产物。就随后的加工而言，产品可用常规的浓缩技术生产。这些常规技术如所需要的那样可以用来满足 $^{238}\text{U}$ 、 $^{235}\text{U}$ 和钚同位素的彼此分离，达到一种反应堆级的材料。

#### 四氯化钛进料

如在另一实施方式所说明的，图4中部分视图所示，以一附加体系提供进料材料来提供并保证选择一个组分或多个组分所需的离子化程度。

在这一特例中，进料材料是由四氯化钛组成的，所需的产品是钛金属，但该技术同样可用于许多其它进料。

在这个设备中，进料（2）通过等离子体发生器（4）被牵制在磁场（8）内。

等离子体的温度要使进料材料转化为离散的原子并可以部分地离子化。

然后进料以这种形式通过电子回旋共振装置（102），由于高能电子

与组分的碰撞，又导致能量输进等离子体。根据合适的相图和设置的碰撞能级水平，作为该系统总能级的结果，在这种情况下，某些组分，钛被离子化，而其它组分，氯仍为非离子化形式。选择性离子化过程是离子化和非离子化之间核素的现行的平衡状态所造成的。

然后物料流进料箱（12），在此不带电荷的氯作为工艺流程物流（14）被从磁场除去。氯再循环到生产四氯化钛全工艺过程的早期阶段。

余下的组分—钛和各加工阶段可以如图 1 所示加以处理或须经其他加工处理。

### 金属铀的生产

另一个实施方案的技术如图 5 所示，对金属铀提供了一个方便的生产技术。该技术同样适用于回收其他元素，即通过分离其他进料材料成为其组成元素。

在氟化铀通过其与镁发生反应转化成金属铀之前，常规技术是采用前面讨论过的技术即浓缩、脱硝、还原和氟氢化的技术。

另一方面，本工艺流程为从六水合硝酸铀酰进料中的分离出金属铀提供一个便利的方法。

六水合硝酸铀酰（200）被引入图 5 的装置，该进料从元素上说是由铀、氮、氧和氢组成的。微波或RF（射频）类的等离子体发生器（202）可很快地使该进料的温度达到4000K。

即使滞留时间很短，但足够把进料分裂成为其离散的元素形式，在许多情况下分裂成为离散的原子。于是进料被转成带有某些 $U^+$ 的U、N、 $N_2$ 、 $O_2$ 、H等。原子化的进料受制于等离子体内，而等离子体只受磁铁（206）产生的磁场（204）吸持。

正当等离子体本身可以引起现存的某些元素部分离子化的时候，一电子回旋共振天线装置（208）被装配来引发离子化到所需的程度。天线装置（208）把能量给存在于等离子体内的电子，而电子增强的能量使进料组分发生碰撞时能量被转移了。按照适用于在现行条件下包含在碰撞中核素的平衡，一些组分发生离子化而其它组分则不发生离子化。进料

的各不同部分可能发生离子化的方式也不相同。前面已讨论过例如铀被离子化其电子激发能级比氧、氢等要低。

因此当工艺流到达进料箱（210）时，工艺流则由离子化的和非离子化的组分构成。因为非离子化组分不被磁场保留。可以用泵将它从来料箱（210）中送入产品流（214）。带电荷组分，主要是铀与受下一个磁铁（216）控制的等离子体一起继续留在工艺流（212）中。

将化学物料（218）导入工艺流（212）对已分离的带电荷组分产生所需的反应或发生相变。因此通过相对低的能级，例如100K时，引入氩气，带电荷组分会转变成不带电荷组分并很快被转变成产品形式，这是由于冷流（218）和物料流（212）之间发生的碰撞而造成的。在所示的此实施方式中，这种转变表明所受的影响在于一种化学物料的引入阶段其第一阶段是把该物料从带电荷的转变成为不带电荷的形式，而第二阶段再把它从气体转变为固体的形式，这也应该受到重视。加入的惰性气体仅仅是致冷，而不会与铀发生化学结合，于是产生了金属铀。

可以用化学物料（218）的性质和加入化学物料时的能级控制在进料箱（220）和产品流（224）中生成的产品形式、结构和化学组成。例如由于氧的吸入可使铀转变成 $O_2$ ，这也是要小心控制氧引入时能级的另一种手段，或者是引入惰性气体以减少铀离子成金属铀形式。

当上面已讨论过关于从初始源提取铀的氢氟化作用阶段时，类似的工艺流程可用来从已生成的四氟化铀开始生成金属铀。

也要重视利用元素组分初始产品物流（214）的加工处理，例如在这种情况下，可以从该物料流中回收氟以供在物料加工处理早期阶段随后再利用。

### 六氟化铀进料

在应用该技术的另一工序中，进料（200）是由六氟化铀组成的。它的选择性离子化导致带电荷的铀离子和不带电荷的氟原子，在进料箱中对它们生成的金属铀和在核燃料加工循环中或是在其他用途方面氟的再利用都是可能的。

要特别重视这一工序的用途，对上面讨论过的未经化学物理富集工

序的废弃物料的处理。这种废弃物料在含有六氟化铀即浓度很低的 $^{235}\text{UF}_6$ ，为了进一步利用 $^{235}\text{UF}_6$ 已尽可能地提取出来，而六氟化铀中绝大部分是 $^{238}\text{UF}_6$ 。目前这种材料还没多大用途，只是作为六氟化铀而长期贮存，但六氟化铀具有相对高的挥发性，并不是一种理想的储存形式。

目前的技术为利用这一废弃物料流或储存一定量的这一产物并把它加工成有用的材料提供了可能，例如释放出的氟可被返回到加工循环过程中再使用。而新的终端产物金属铀更容易更方便的一种储存形式或使其便于使用。

由此可以生产出氟和用过的铀金属。

控制加入到铀离子中的化学物质例如在猝熄过程中还可产生其它的化合物，如氮化铀、碳化铀和氧化铀都可能生成。

该发明的下一个实施例可用图 6 所示装置加以说明。对这一装置的阐述将在从六氟化铀进料中分离铀的过程进行。这个装置也可以用于其他方面。

六氟化铀液体进料以蒸汽形式被引入物料流（300），蒸汽态的六氟化铀很快被一射频等离子体发生器（302）转变为等离子体。等离子体发生器的操作压力为2Kpa，为了从根本上确保进料中因高强度碰撞产生的所需组分的平衡离子化水平。

陶瓷性质的氟化物在等离子体发生器的内部可以形成接触部分，以产生抵抗外界的物理性质。这系统是利用铜的表面与充水的管子接触而被冷却，水的流动使铜壁温度降低，氟化铀冷凝在铜表面上。对铜起到化学的和热的隔绝作用，最终由于平衡态发展使得沉积在铜表面的氟化铀达到一定的厚度。于是提供了一个自衬效应。

发生的等离子体通过喷嘴（304）从发生器（302）出来并被磁场约束，如（306）图示。喷嘴的半径大约为30mm以维持等离子体发生器（304）内的压力和给出所希望达到的流速。

等离子体一离开等离子体发生器进入 I 区（308），就继续冷却，但铀离子对磁场所做的功将引发部分再加热。如果在以后的加工过程中适当地向等离子体引入附加能量就可以维持温度在一定的水平，使所要的组分保持离子化。可以用射频手段提供这种能量，于是就可以维持基本

平衡所达到的预期选择性。

等离子体发生器物料射束随着距等离子体发生器的距离加大势必会扩展开来。

划分各区域的隔板（310，312）上面选择性的孔径就是考虑到这一扩展而设计的。

包容磁场的强度大约为0.1特斯拉，虽然可用超导磁铁，但普通的电磁元件也可达到这一强度。这样的磁场强度把铀离子限定在半径180mm左右、距喷嘴的距离为3m的（磁场）范围内。每一区域 / 区段的长度为1m。扩展束的半径大致与其行程距离四次方根成正比。

在区域1（308）内，装配有通向真空泵的出口（314）（图未示出）。从这些出口第一股废物流从装置中被抽出，废物流含有不带电荷物质主要是氟。可以用铝作废物流管道。

区域1的压力大约为13Pa，当物料通过这一区域时，其中氟的压力将减至这一值。过量的氟用市场上可以买到的泵从出口（314）打出去。

然后减压的氟含量流束通过隔板（310）上的空隙（318）进入区域2（316）。

第二个区域（316）的操作压力比第一个区域的低，大约为5Pa，当物料通过第二个区域时，物料束中的氟含量一次降压到这一程度。

然后，物料束通过隔板（312）上的空隙（322）进入区域3（320）。

这一区域的操作压力继续降低大约为2Pa，在这一压力下过量的氟通过出口（324）被泵抽出。

大量的用过的氟束经出口（326）排出随后再处理。

离子化的气态铀可能会与某些装置中的网格接触，释放出电，由于铀的能量减少，它从气体转变成固体或液体。应该考虑化学物料的引入对猝熄作用和 / 或冷却作用的影响。在这方面，用惰性气体去冷却铀较为可取，因为铀不会与惰性气体发生化学反应，结果就产生了金属铀。铀可以充分冷却使其成固体或部分冷却使其保持在液体状态。

留在铀产物物流（326）中的氟，以氟化铀的形式很容易从铀产物中挥发出来并进入再循环。当铀以液体形式被收集时，在原处就可以很方便地进行分离。已挥发的UF大部分被转化为UF<sub>6</sub>，都可以进入再循环。

对 $\text{UF}_4$ 、 $\text{TiCl}_4$ 和其它金属卤化物都可以进行类似的分离。

可以提供收集氟的设备，氟是从液体中放气而产生的。

陶瓷氟化物或石墨材料可用作收集液体的器皿。

对于每小时1.2kg的铀进料需要每小时5.7kg的氟进料。在这些氟进料中，预计有3.6kg/h从区域1被抽出，1.3kg/h从区域2被抽出；0.5kg/h从区域3中被抽出；0.3kg/h留在铀产物物流（326）中。

从这个产物物流中氟以 $\text{UF}_6$ 和 / 或 $\text{UF}_4$ 的形式释放出来，得到一很纯的铀产品，即产物中氟的含量仅为ppm数量级。

这里提出的各种实施方式彼此紧密相关。应当认识到，明确讨论过的有关一个方面或许多方面或实施方式也可应用于其他方面。

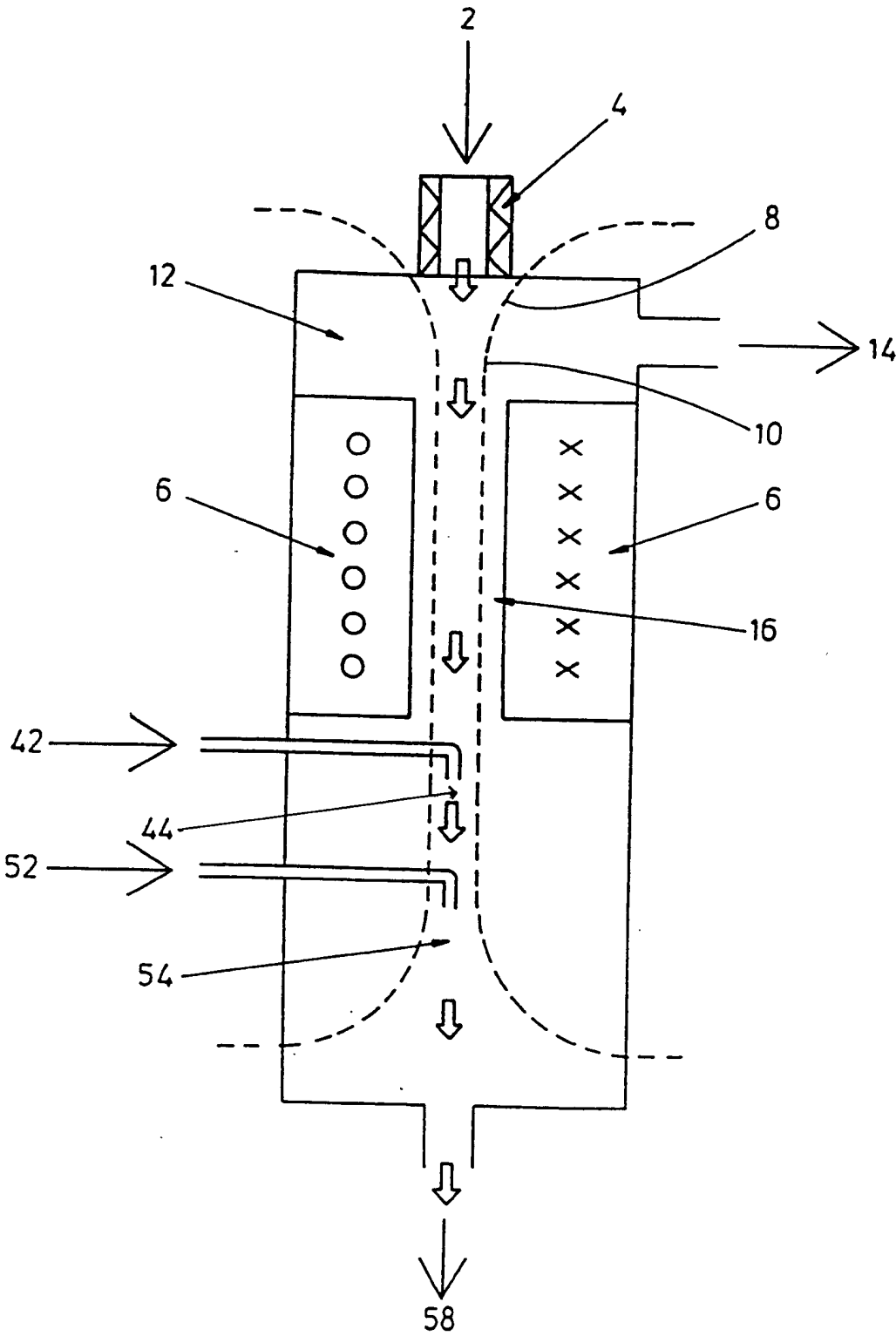
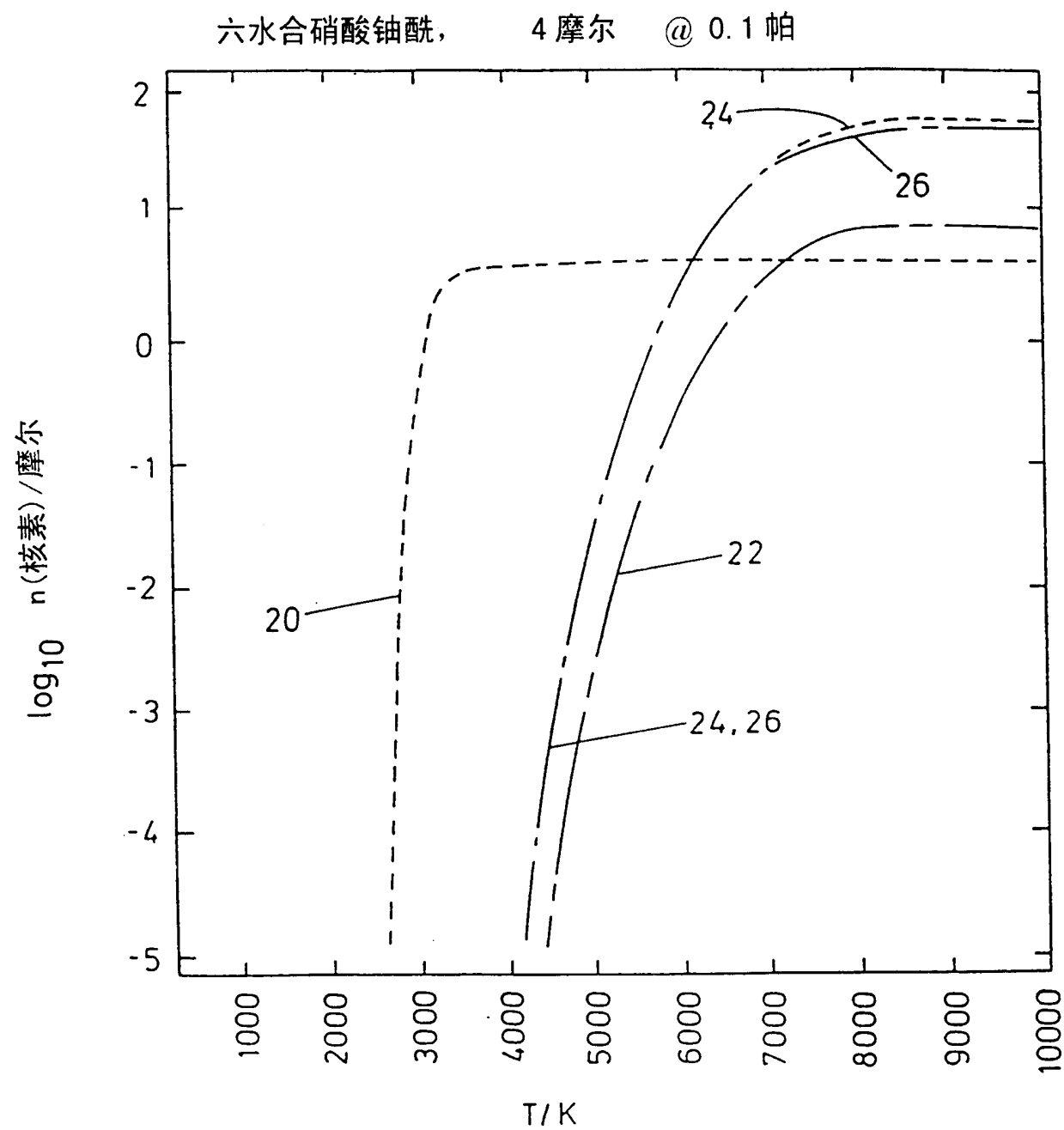


图 1



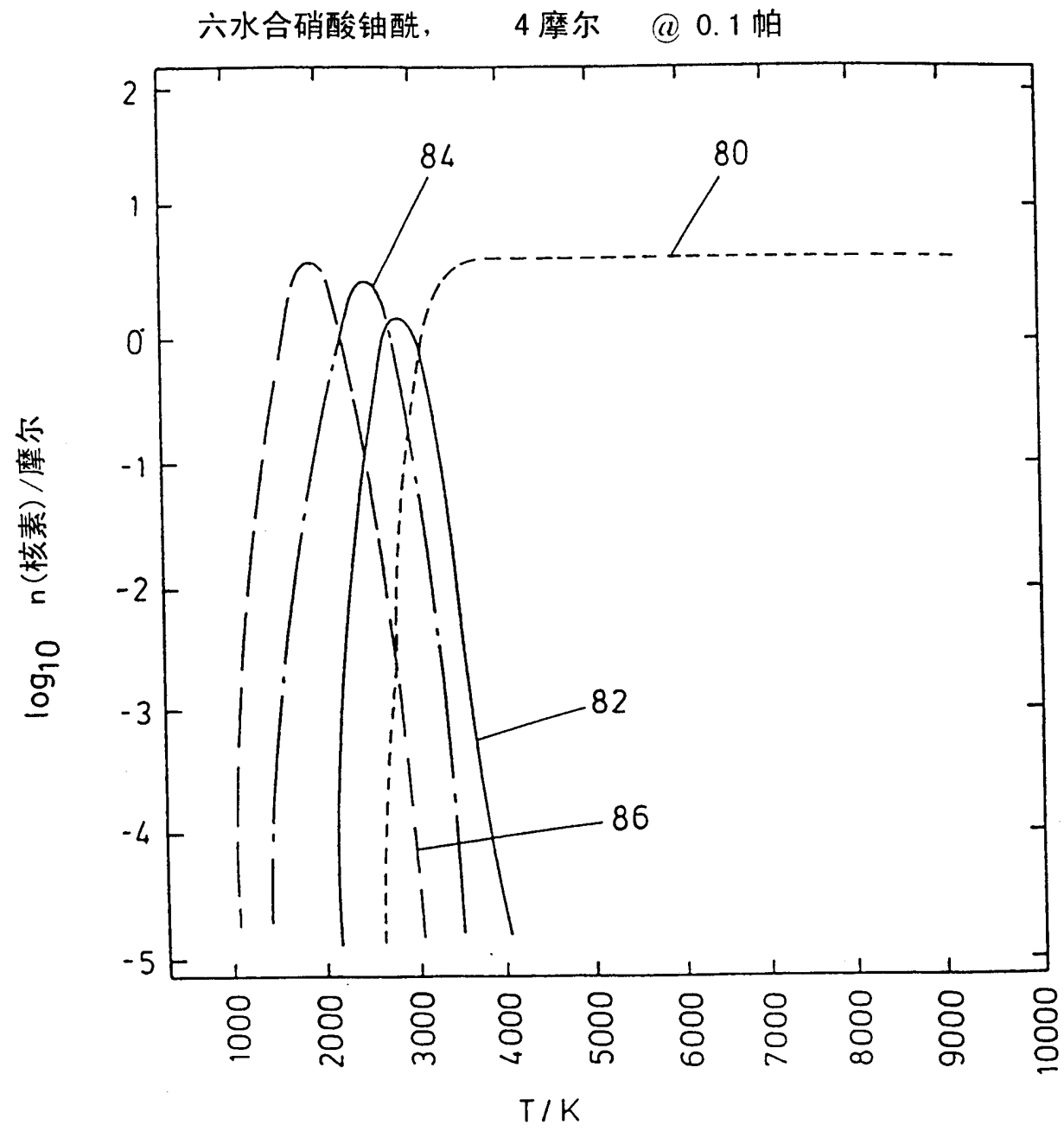


图 3

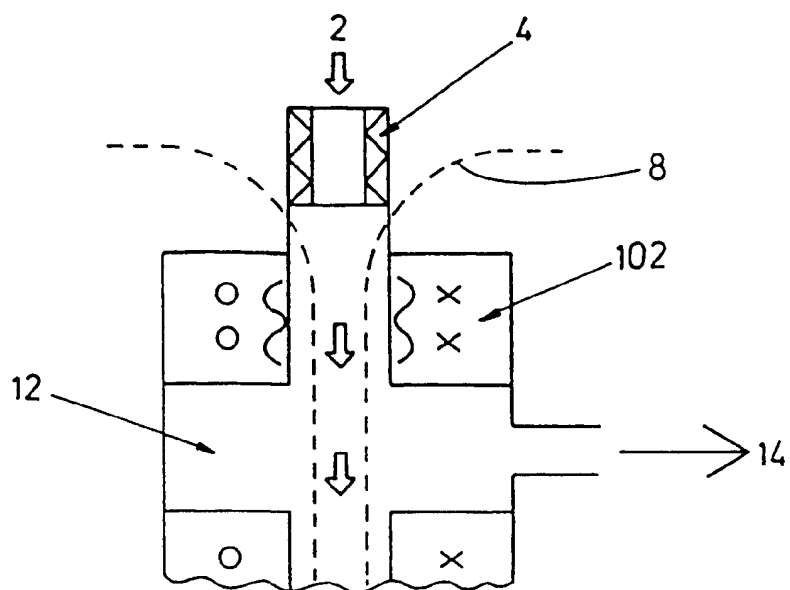


图 4

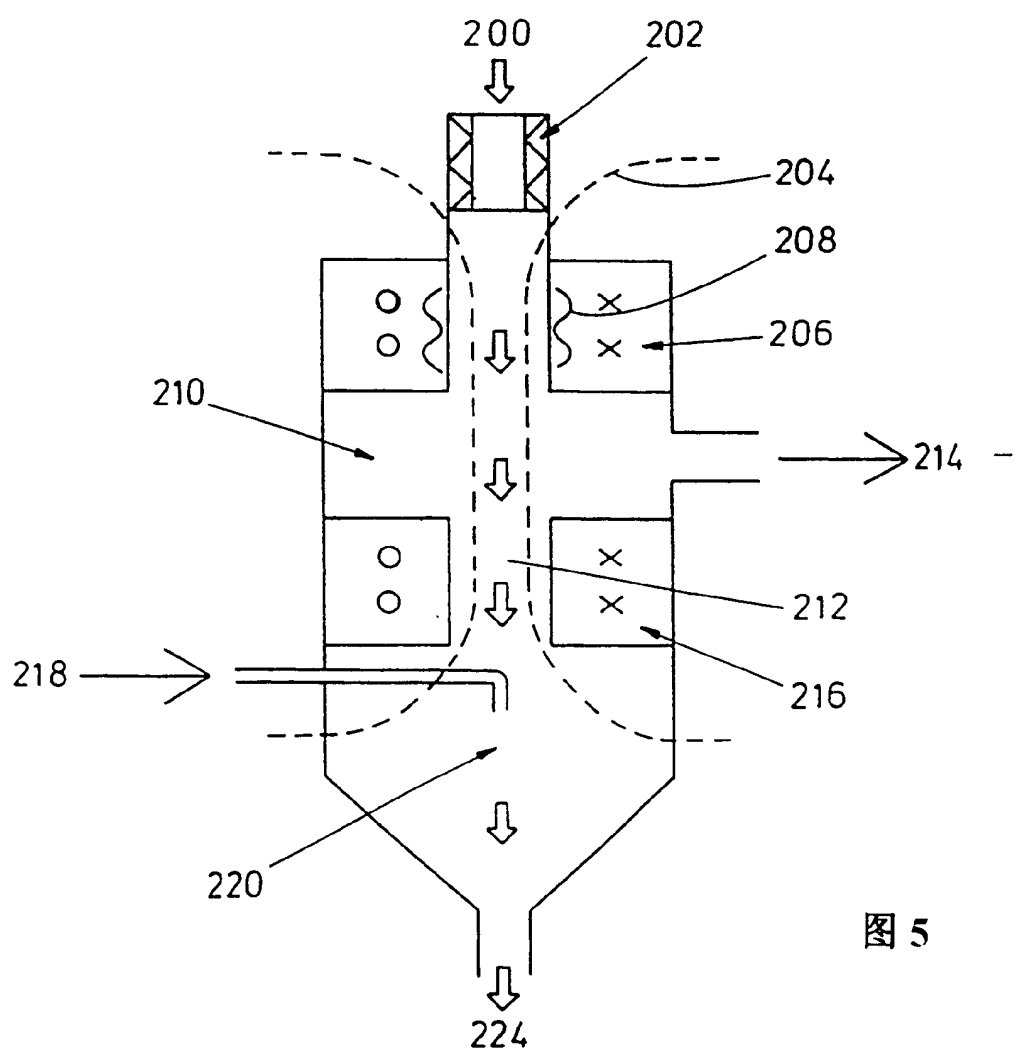


图 5

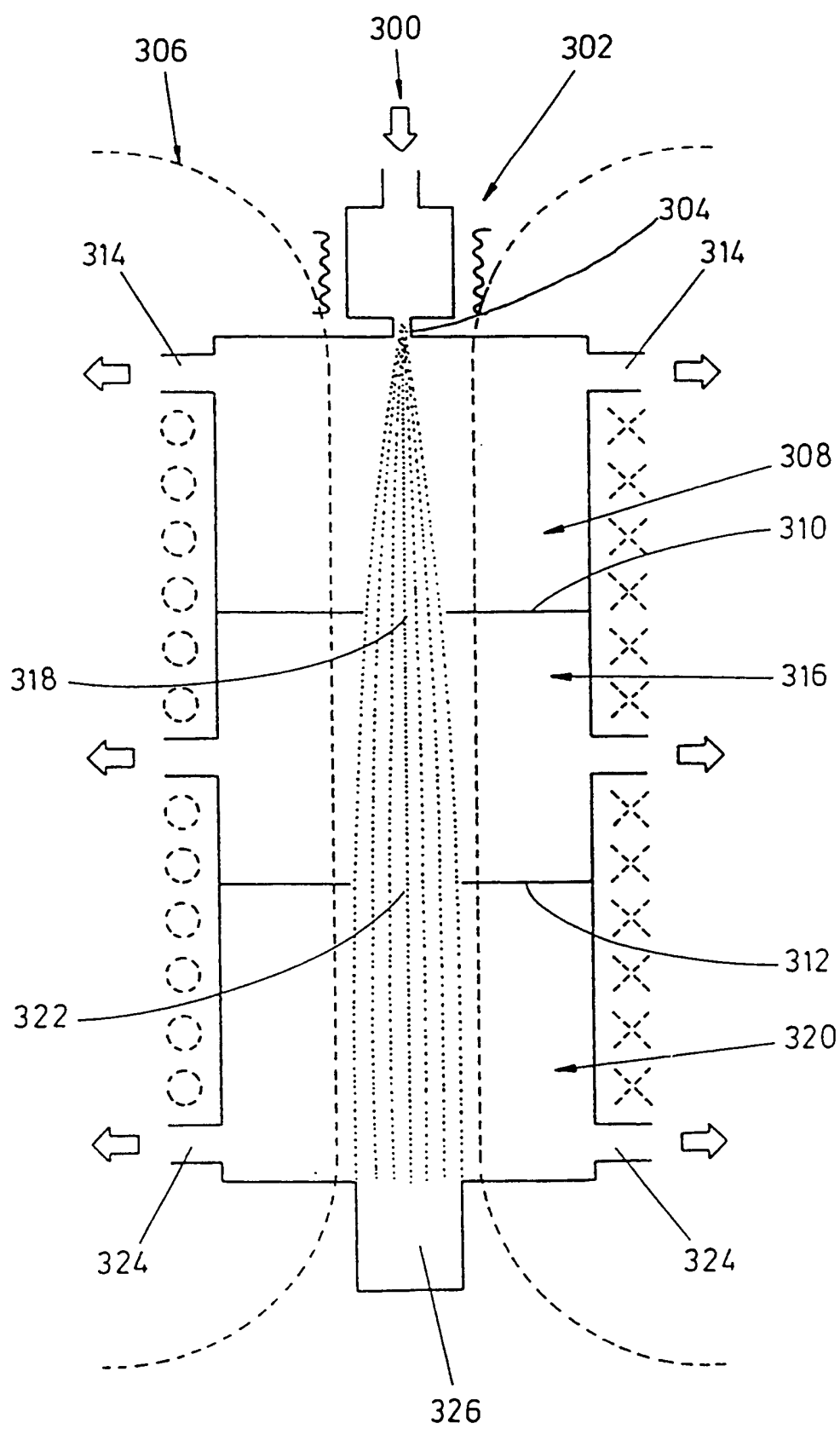


图 6